

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003 年 3 月 13 日 (13.03.2003)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/022011 A1

(51) 国際特許分類: H05B 33/24, 33/14, 33/10

(21) 国際出願番号: PCT/JP02/06354

(22) 国際出願日: 2002 年 6 月 25 日 (25.06.2002)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2001-264410 2001 年 8 月 31 日 (31.08.2001) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ソニー株式会社 (SONY CORPORATION) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 花輪 幸治

(HANAWA, Koji) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP).  
山田 二郎 (YAMADA, Jiro) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP).  
平野 貴之 (HIRANO, Takashi) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 藤島 洋一郎 (FUJISHIMA, Youichiro); 〒160-0022 東京都新宿区新宿 1 丁目 9 番 5 号 大台ビル 2 階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): CN, KR, SG, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

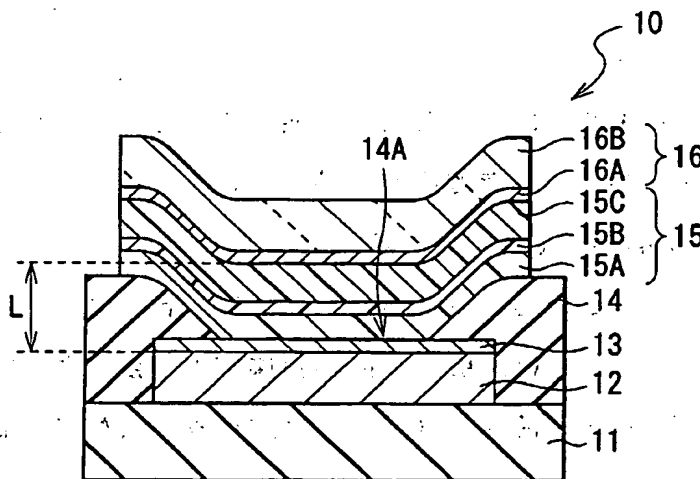
添付公開書類:

— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE DEVICE AND ITS PRODUCING METHOD

(54) 発明の名称: 有機電界発光素子およびその製造方法



(57) Abstract: An organic electroluminescence device having a luminous efficiency improved by increasing the reflectance of the anode and its producing method are disclosed. On a substrate (11), an anode (12), an organic layer (15) including a hole-injection thin-film layer (13), an insulating layer (14), and an emitting layer (15c), and a cathode (16) including a semitransparent electrode (16a) are provided in multilayer. The anode (12) is made of silver, a metal of high reflectance, or an alloy containing silver, and the hole-injection thin-film layer (13) contains chromium oxide. The light emitted from the emitting layer (15c) is multiply reflected between the anode (12) and the semitransparent electrode (16a) and outputted from the cathode (16). Since the reflectance of the anode (12) is high, the light emitted from the emitting layer (15c) can be outputted at high efficiency. The alloy of the anode (12) is preferably an alloy containing silver, palladium, and copper, and the content of silver is preferably 50 mass% or more.

[続葉有]

WO 03/022011 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

---

(57) 要約:

陽極の反射率を高めることにより発光効率を向上させることができる有機電界発光素子およびその製造方法を提供する。基板(11)の上に、陽極(12)、正孔注入用薄膜層(13)、絶縁層(14)、発光層(15C)を含む有機層(15)、および半透過性電極(16A)を含む陰極(16)が順に積層されている。陽極(12)は反射率の高い金属である銀、または銀を含む合金により構成され、正孔注入用薄膜層(13)は酸化クロムなどにより構成されている。発光層(15C)で発生した光は、陽極(12)と半透過性電極(16A)との間で多重反射し、陰極(16)の側から取り出される。陽極(12)の反射率が高くなっているので、発光層(15C)で発生した光を効率よく取り出すことができる。陽極(12)を構成する合金としては、銀とパラジウムと銅とを含む合金が好ましく、銀の含有量は50質量%以上であることが好ましい。

## 明細書

## 有機電界発光素子およびその製造方法

## 技術分野

本発明は、陽極と陰極との間に発光層を含む１層以上の有機層を備え、特に、発光層で発生した光を陰極の側から取り出す有機電界発光素子（有機ＥＬ； Electroluminescence 素子）およびその製造方法に関する。

## 背景技術

近年、液晶ディスプレイに代わる表示装置として、有機電界発光素子を用いた有機ＥＬディスプレイが注目されている。有機ＥＬディスプレイは、自発光型であるので視野角が広く、消費電力が低いという特性を有し、また、高精細度の高速ビデオ信号に対しても十分な応答性を有するものと考えられており、実用化に向けて開発が進められている。

第６図は有機電界発光素子の一構成例を表すものである。この有機電界発光素子は、基板１１１の上に、陽極１１２と、正孔注入層１１５Ａ、正孔輸送層１１５Ｂおよび発光層１１５Ｃを含む有機層１１５と、陰極１１６とがこの順に積層されている。発光層１１５Ｃで発生した光は基板１１１の側から取り出される場合もあるが、第６図に示したように、陰極１１６の側から取り出される場合もある。

光を陰極１１６の側から取り出す場合、陽極１１２は例えばクロム（Ｃｒ）などの金属により構成され、陰極１１６はインジウム（Ｉｎ）とスズ（Ｓｎ）と酸素（Ｏ）との化合物（ＩＴＯ； Indium Tin Oxide）などの透過性を有する導電性材料により構成されることが多い。発光層１１５Ｃで発生した光は、第６図において矢印１１７で示したように、陰極１１６を通して直接取り出されるものもあるが、矢印１１８で示したように、陽極１１２で一度反射してから陰極１１６を通して放出されるものもある。

しかしながら、従来は陽極１１２をクロムなどにより構成していたので、陽極

1 1 2における光の吸収率が大きく、陽極1 1 2で反射されてから取り出される光の損失が大きいという問題があった。陽極の吸収率が有機電界発光素子に与える影響は大きく、発光効率が低いと同一輝度を得るために必要な電流量が増加してしまう。駆動電流量の増加は、有機電界発光素子の実用化にとって重大な問題である素子寿命に大きな影響を与える。

本発明はかかる問題点に鑑みてなされたもので、その目的は、陽極の反射率を高めることにより発光効率を向上させることができる有機電界発光素子およびその製造方法を提供することにある。

#### 発明の開示

本発明による有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に発光層を含む1層以上の有機層を備え、発光層で発生した光を陰極の側から取り出すものであって、陽極は、銀（Ag）または銀を含む合金により構成されたものである。

本発明による第1の有機電界発光素子の製造方法は、陽極と陰極との間に発光層を含む1層以上の有機層を備え、発光層で発生した光を陰極の側から取り出す有機電界発光素子を製造するものであって、基板の上に、銀または銀を含む合金よりなる陽極を形成する工程と、この陽極の上に、陽極よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層を、不活性ガス雰囲気中において成膜する工程と、この正孔注入用薄膜層の上に、発光層を含む1層以上の有機層を形成する工程と、この有機層の上に、陰極を形成する工程とを含むものである。

本発明による第2の有機電界発光素子の製造方法は、陽極と陰極との間に発光層を含む1層以上の有機層を備え、発光層で発生した光を陰極の側から取り出す有機電界発光素子を製造するものであって、基板の上に、銀または銀を含む合金よりなる陽極を形成する工程と、この陽極の上に、陽極よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層を、形成予定領域に対応して開口を有するエリアマスクを用いて成膜する工程と、この正孔注入用薄膜層の上に、発光層を含む1層以上の有機層を形成する工程と、この有機層の上に、陰極を形成する工程とを含むものである。

本発明による有機電界発光素子では、陽極を、金属の中で最も反射率の高い銀

または銀を含む合金により構成するようにしたので、陽極における光の吸収損失が小さくなり、発光層で発生した光が効率良く取り出される。

本発明による第1の有機電界発光素子の製造方法では、基板の上に、銀または銀を含む合金よりなる陽極が形成されたのち、陽極の上に、正孔注入用薄膜層が不活性ガス雰囲気中において成膜される。よって、正孔注入用薄膜層により陽極の変質が防止されると共に、正孔注入用薄膜層を成膜する際においても陽極の変質が防止される。

本発明による第2の有機電界発光素子の製造方法では、基板の上に、銀または銀を含む合金よりなる陽極が形成されたのち、陽極の上に、正孔注入用薄膜層が形成予定領域に対応して開口を有するエリアマスクを用いて成膜される。よって、正孔注入用薄膜層により陽極の変質が防止されると共に、正孔注入用薄膜層を形成する際のエッチング工程が不要となり、エッチングによる陽極の変質および変形も防止される。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の第1の実施の形態に係る有機電界発光素子の構成を表す断面図である。

第2A図乃至第2C図は、第1図に示した有機電界発光素子の製造方法を工程順に表す断面図である。

第3A図および第3B図は、第1の実施の形態に係る有機電界発光素子の製造方法の変形例を工程順に表す断面図である。

第4図は、本発明の第2の実施の形態に係る有機電界発光素子の構成を表す断面図である。

第5A図および第5B図は、第4図に示した有機電界発光素子の製造方法を工程順に表す断面図である。

第6図は、従来の有機電界発光素子の構成を表す断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態について図面を参照して詳細に説明する。

## 〔第1の実施の形態〕

第1図は、本発明の第1の実施の形態に係る有機電界発光素子の断面構造を表すものである。この有機電界発光素子10は、極薄型の有機ELディスプレイ装置などに用いられるものであり、例えば、ガラスなどの絶縁材料よりなる基板11の上に、陽極12、正孔注入用薄膜層13、絶縁層14、有機層15、および陰極16がこの順に積層された構造とされている。なお、陰極15の上には、図示しないパッシベーション膜が形成され、さらに全体が図示しない封止基板により封止されている。

陽極12は、積層方向の厚み（以下、単に厚みと言う）が例えば200nmであり、銀または銀を含む合金により構成されている。銀は金属の中で最も反射率が高く、陽極12における光の吸収損失を小さくすることができるからである。なお、陽極12を銀により構成するようにすれば反射率を最も高くすることができるので好ましいが、銀と他の金属との合金により構成するようにすれば、化学的安定性および加工精度を高めることができると共に、基板11および正孔注入用薄膜層13との密着性も向上させることができるので好ましい。銀は非常に反応性が高く、加工精度および密着性も低いなど、極めて取り扱いが難しいからである。

合金における銀の含有量は50質量%以上とすることが好ましい。反射率を十分に高くすることができるからである。銀を含む合金としては、例えば、銀とパラジウム（Pd）と銅（Cu）とを含む合金が好ましく挙げられる。この合金におけるパラジウムおよび銅の含有量は、それぞれ例えば0.3質量%～1質量%の範囲内であることが好ましい。このような範囲内において、反射率を十分に高くしつつ、加工精度、化学的安定性および密着性を高くすることができるからである。

正孔注入用薄膜層13は、有機層15への正孔注入効率を高めるためのものであり、陽極12よりも仕事関数の高い材料により構成されている。また、正孔注入用薄膜層13は、陽極12を構成する銀あるいは銀を含む合金が空気中の酸素あるいは硫黄成分と反応することを防止すると共に、陽極12を形成した後の製造工程においても陽極12がダメージを受けることを緩和するという保護膜とし

ての機能も有している。正孔注入用薄膜層 13 を構成する材料としては、例えば、クロム、ニッケル (Ni)、コバルト (Co)、モリブデン (Mo)、白金 (Pt) あるいはシリコン (Si) などの金属、またはこれらのうちの少なくとも 1 種を含む合金、またはこれら金属あるいは合金の酸化物あるいは窒化物、または ITO などの透明導電性材料が挙げられる。正孔注入用薄膜層 13 の厚みは、構成材料の光の透過率と導電率とに応じて決定することが好ましい。例えば、酸化クロム (III) ( $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ) などの導電率のあまり高くない酸化物や窒化物により構成する場合は薄い方が好ましく、例えば 5 nm 程度とされることが好ましい。また、導電率が高く透過率が低い金属により構成する場合にも薄い方が好ましく、例えば数 nm とされることが好ましい。一方、導電率、透過率ともに高い ITO により構成する場合には数 nm ~ 数十 nm 程度まで厚くすることが可能である。

絶縁層 14 は、陽極 12 と陰極 16 との絶縁性を確保するとともに有機電界発光素子 10 の発光部分の形状を正確に所望の形状にするためのものであり、例えば二酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) などの絶縁材料により構成されている。絶縁層 14 の厚みは例えば 600 nm 程度とされ、発光領域に対応して開口部 14A が設けられている。

有機層 15 は、有機材料よりそれぞれなる正孔注入層 15A、正孔輸送層 15B および発光層 15C が陽極 12 の側からこの順に積層された構造を有している。正孔注入層 15A および正孔輸送層 15B は発光層 15C への正孔注入効率を高めるためのものである。発光層 15C は電流の注入により光を発生するもので、絶縁層 14 の開口部 14A に対応した領域で発光するようになっている。

正孔注入層 15A は、例えば、厚みが 30 nm 程度であり、4, 4', 4''-トリス (3-メチルフェニルフェニルアミノ) トリフェニルアミン (MTDATA) により構成されている。正孔輸送層 15B は、例えば、厚みが 20 nm 程度であり、ビス [(N-ナフチル)-N-フェニル] ベンジジン ( $\alpha$ -NPD) により構成されている。発光層 15C は、例えば、厚みが 50 nm 程度であり、8-キノリノールアルミニウム錯体 (Alq) により構成されている。

陰極 16 は、発光層 15C で発生した光に対して半透過性を有する半透過性電

極 1 6 A と、発光層 1 5 C で発生した光に対して透過性を有する透明電極 1 6 B とが有機層 1 5 の側からこの順に積層された構造を有している。半透過性電極 1 6 A は、例えば、厚みが 1 0 n m 程度であり、マグネシウム (M g) と銀との合金 (M g A g 合金) により構成されている。マグネシウム・銀合金としては、例えばマグネシウムと銀とが質量比で 9 : 1 のものが好ましい。

半透過性電極 1 6 A は、発光層 1 5 C で発生した光を陽極 1 2 との間で反射させるためのものである。すなわち、半透過性電極 1 6 と陽極 1 2 とで、発光層 1 5 C で発生した光を共振させる共振器の共振部を構成している。このように共振器を構成するようにすれば、発光層 1 5 C で発生した光が多重干渉を起こし、一種の狭帯域フィルタとして作用することにより、取り出される光のスペクトルの半値幅が減少し、色純度を向上させることができるので好ましい。

そのためには、狭帯域フィルタのピーク波長と、取り出したい光のスペクトルのピーク波長とを一致させるようにすることが好ましい。すなわち、陽極 1 2 および半透過性電極 1 6 A で生じる反射光の位相シフトを  $\Phi$  (r a d)、陽極 1 2 と半透過性電極 1 6 A との間の光学的距離を  $L$ 、陰極 1 6 の側から取り出したい光のスペクトルのピーク波長を  $\lambda$  とすると、この光学的距離  $L$  は数式 1 を満たすようにすることが好ましく、実際には、数式 1 を満たす正の最小値となるように選択することが好ましい。なお、数式 1 において  $L$  および  $\lambda$  は単位が共通すればよいが、例えば (n m) を単位とする。

(数式 1)

$$2 L / \lambda + \Phi / 2 \pi = q \quad (q \text{ は整数})$$

透明電極 1 6 B は、半透過性電極 1 6 A の電気抵抗を下げるためのものであり、発光層 1 5 C で発生した光に対して十分な透光性を有する導電性材料により構成されている。透明電極 1 6 B を構成する材料としては、例えば、インジウムと亜鉛 (Z n) と酸素とを含む化合物が好ましい。室温で成膜しても良好な導電性を得ることができるからである。透明電極 1 6 B の厚みは、例えば 2 0 0 n m 程度とすることが好ましい。

この有機電界発光素子 1 0 は、例えば、次のようにして製造することができる。

第 2 A 図乃至第 2 C 図はこの有機電界発光素子 1 0 の製造方法を工程順に表す



ものである。まず、第2 A図に示したように、上述した材料よりなる基板11の上に、例えば直流スパッタリングにより、銀または銀を含む合金よりなる陽極12を上述した厚みで成膜する。その際、スパッタガスとしては例えばアルゴン(Ar)を用い、圧力は例えば0.2Pa、出力は例えば300Wとする。

次いで、同じく第2 A図に示したように、陽極12上に、例えば高周波スパッタリングにより、上述した厚みおよび材料よりなる正孔注入用薄膜層13を成膜する。その際、圧力は例えば0.3Pa、出力は例えば10Wとし、スパッタガスとしてはアルゴン(Ar)あるいは窒素(N<sub>2</sub>)などの不活性ガスを用いて不活性ガス雰囲気中で成膜することが好ましい。陽極12に含まれる銀は反応性が高いので、酸素雰囲気などで成膜すると陽極12も酸化されてしまうからである。よって、正孔注入用薄膜層13を例えば酸化クロムなどの酸化物により構成する場合には、クロムターゲットなどの金属ターゲットを用いて酸素雰囲気中で成膜するのではなく、酸化クロムなどの酸化物ターゲットを用いて不活性ガス雰囲気中で成膜するようにすることが好ましい。

続いて、第2 B図に示したように、陽極12と正孔注入用薄膜層13とを、例えば硝酸とリン酸と酢酸との混合液によりリソグラフィ技術を用いて選択的にエッチングし、所定の形状にパターンニングする。その後、同じく第2 B図に示したように、基板11の全面にわたり、例えばCVD (Chemical Vapor Deposition ; 化学的気相成長) 法により絶縁層14を上述した厚みで成膜し、例えばリソグラフィ技術を用いて絶縁層14のうち発光領域に対応する部分を選択的に除去し開口部14Aを形成する。

絶縁層14を形成したのち、第2 C図に示したように、例えば蒸着法により、上述した厚みおよび材料よりなる正孔注入層15A、正孔輸送層15B、発光層15Cおよび透過性電極16Aを順次成膜する。その際、形成予定領域に対応して開口21Aを有する金属性のエリアマスク21を用い、発光領域、すなわち絶縁層14の開口部14Aに対応して成膜するようにすることが好ましい。但し、開口部14Aにのみ高精度に蒸着することは難しいので、開口部14A全体を覆い、絶縁層14の縁に少しかかるようにすることが好ましい。

具体的には、まず、正孔注入層15A、正孔輸送層15Bおよび発光層15C

を形成する材料を、例えば別々の抵抗加熱用のポートに0.2 gずつ充填して、図示しない真空蒸着装置の所定の電極に取り付ける。半透過性電極16Aを形成する例えばマグネシウムおよび銀についても、例えば別々の抵抗加熱用のポートにマグネシウムを0.1 g、銀を0.4 gずつ充填して、図示しない真空蒸着装置の所定の電極に取り付ける。また、図示しない真空蒸着装置の陰極には例えばマグネシウムと銀との合金を用いる。次いで、図示しない真空蒸着装置内の雰囲気例えば $1.0 \times 10^{-4}$  Paまで減圧したのち、各抵抗加熱用のポートに電圧を印加し、順次加熱して、正孔注入層15A、正孔輸送層15B、発光層15Cおよび半透過性電極16Aを順次蒸着する。半透過性電極16Aを蒸着する際には、マグネシウムと銀とを共蒸着させ、マグネシウムと銀との成長速度比を例えば9:1とする。

最後に、半透過性電極16Aの上に、例えば直流スパッタリングにより、同じ金属マスク21を用いて透明電極16Bを成膜する。スパッタガスとしては例えばアルゴンと酸素との混合ガス（体積比Ar:O<sub>2</sub>=100.0:5）を用い、圧力は例えば0.3 Pa、出力は例えば40 Wとする。これにより、第1図に示した有機電界発光素子10が形成される。

この有機電界発光素子10では、陽極12と陰極16との間に所定の電圧が印加されると、発光層15Cに電流が注入され、正孔と電子とが再結合することにより、主として発光層15C側の界面において発光が起こる。この光は、陽極12と半透過性電極16Aとの間で多重反射し、陰極16を透過して取り出される。本実施の形態では、陽極12が銀または銀を含む合金により構成されているので、陽極12における反射率が高くなっている。よって、発光層15Cで発生した光が効率よく取り出される。

このように、本実施の形態によれば、陽極12を銀または銀を含む合金により構成するようにしたので、陽極12の反射率を高くすることができ、陽極12における光の吸収損失を小さくすることができる。よって、発光層15Cで発生した光の取り出し効率を向上させることができる。

特に、陽極12を銀とパラジウムと銅とを含む合金により構成するようにすれば、化学的安定性、加工精度および密着性を向上させることができる。また、銀

の含有量を50質量%以上とすれば、反射率を十分に高くしつつ、化学的安定性、加工精度および密着性を改善することができる。

さらに、陽極12と有機層15との間に、陽極12よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層13を有するようにすれば、有機層15への正孔注入効率をより高めることができる。また、陽極12を構成する銀あるいは銀を含む合金が空気中の酸素あるいは硫黄成分と反応することを防止することができると共に、陽極12を形成した後の製造工程においても陽極12に対するダメージを緩和することができる。

加えて、正孔注入用薄膜層13を不活性ガス雰囲気において成膜するようにすれば、陽極12を反応性が高い銀あるいは銀を含む合金により構成するようにしても、正孔注入用薄膜層13の成膜時に陽極12が酸化などにより変質することを防止することができる。よって、陽極12について目的とする特性を得ることができ、本実施の形態に係る有機電界発光素子10を容易に得ることができる。

#### 〔変形例〕

第3A図および第3B図は第1の実施の形態に係る有機電界発光素子10の製造方法の変形例を表すものである。この変形例は、正孔注入用薄膜層13の成膜をエリアマスク22を用いて行い、正孔注入用薄膜層13をリソグラフィ技術などを用いてパターニングする必要をなくしたものである。

まず、第3A図に示したように、基板11の上に上述したようにして陽極12を成膜し、パターニングする。次いで、第3B図に示したように、例えば高周波スパッタリングにより、正孔注入用薄膜層13の形成予定領域に対応して開口22Aを有するエリアマスク22を用いて、所望の部分すなわちパターニングされた陽極12の上のみに正孔注入用薄膜層13を成膜する。スパッタガス等の成膜条件は、第1の実施の形態と同様である。続いて、第1の実施の形態と同様にして、絶縁層14、有機層15および陰極16を形成する。

このように本変形例によれば、正孔注入用薄膜層13をエリアマスク22を用いて成膜するようにしたので、リソグラフィ技術などを用いた正孔注入用薄膜層13のパターニングが不要となる。よって、陽極12を反応性が高い銀または銀を含む合金により構成するようにしても、正孔注入用薄膜層13をパターニング

する際のエッチングにより陽極 1 2 が過剰にエッチングされたり、あるいは変質することを防止することができる。従って、陽極 1 2 のパターンニング精度を向上させることができると共に、陽極 1 2 について目的とする特性を得ることができる。すなわち、第 1 の実施の形態に係る有機電界発光素子を容易に得ることができる。

〔第 2 の実施の形態〕

第 4 図は本発明の第 2 の実施の形態に係る有機電界発光素子の断面構造を表すものである。この有機電界発光素子 3 0 は、陽極 1 2 および絶縁層 1 4 の上に正孔注入用薄膜層 1 3 が設けられていることを除いては、第 1 の実施の形態で説明した有機電界発光素子 1 0 と同一である。したがって、同一の構成要素には同一の符号を付して、その詳細な説明を省略する。

第 5 A 図および第 5 B 図はこの有機電界発光素子 3 0 の製造方法を工程順に表すものである。まず、第 5 A 図に示したように、第 1 の実施の形態と同様にして、基板 1 1 の上に陽極 1 2 を成膜し、この陽極 1 2 を、例えばリソグラフィ技術を用いて、所定の形状にパターンニングする。次いで、同じく第 5 A 図に示したように、陽極 1 2 および基板 1 1 の全面に、第 1 の実施の形態と同様にして絶縁層 1 4 を成膜し、開口部 1 4 A を形成する。続いて、第 5 B 図に示したように、正孔注入用薄膜層 1 3 の形成予定領域に対応して開口 2 3 A を有するエリアマスク 2 3 を用いて、第 1 の実施の形態と同様にして正孔注入用薄膜層 1 3 を成膜する。その際、正孔注入用薄膜層 1 3 が開口部 1 4 A 全体を多い、絶縁層 1 4 の縁に少しかかるようにする。そののち、同じくエリアマスク 2 3 を用い、第 1 の実施の形態と同様にして、有機層 1 5 および陰極 1 6 を形成する。

このように、本実施の形態によれば、正孔注入用薄膜層 1 3 をエリアマスク 2 3 を用いて成膜するようにしたので、上記変形例と同様の効果を得ることができる。

更に、本発明の具体的な実施例について説明する。

第 1 の実施の形態、変形例および第 2 の実施の形態と同様にして、有機電界発光素子をそれぞれ作製した。その際、陽極 1 2 を、9.8 質量%の銀と、1 質量%のパラジウムと、1 質量%の銅とを含む合金により形成し、正孔注入用薄膜層 1

3を、酸化クロム（I.I.I）（ $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ）により形成した。得られた各有機電界発光素子について、輝度1000（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）で電圧6.47（V）、電流0.341（mA）として発光効率を調べたところ、いずれについてもほぼ11.7（ $\text{cd}/\text{A}$ ）であった。

本実施例に対する比較例として、従来のように陽極をクロムにより形成し、正孔注入用薄膜層を省いたことを除き、本実施例と同様にして有機電界発光素子を作製した。この比較例についても、輝度1000（ $\text{cd}/\text{m}^2$ ）で電圧7.16（V）、電流0.69（mA）として発光効率を調べたところ、5.86（ $\text{cd}/\text{A}$ ）であった。

このように、本実施例によれば、比較例に比べて約2倍の発光効率を得ることができた。すなわち、陽極12が銀を含むようにすれば、陽極12における反射率を高めることができ、特性を改善できることが分かった。

以上、実施の形態を挙げて本発明を説明したが、本発明は上記実施の形態に限定されるものではなく、種々変形が可能である。例えば、上記実施の形態において説明した各層の材料および厚み、または成膜方法および成膜条件などは限定されるものではなく、他の材料および厚みとしてもよく、または他の成膜方法および成膜条件としてもよい。

また、上記実施の形態では、有機電界発光素子の構成を具体的に挙げて説明したが、正孔注入用薄膜層13、絶縁層14あるいは透明電極16Bなどの全ての層を備える必要はなく、また、他の層を更に備えていてもよい。なお、半透過性電極16Aを備えない場合についても本発明を適用することができるが、本発明は、陽極12での反射率を高めるものであるので、半透過性電極16Aと陽極12とで共振器の共振部を構成する場合の方が、より高い効果を得ることができる。

以上説明したように本発明の有機電界発光素子によれば、陽極を銀または銀を含む合金により構成するようにしたので、陽極の反射率を高くすることができ、陽極における光の吸収損失を小さくすることができる。よって、発光層で発生した光の取り出し効率を向上させることができる。

特に、本発明の一局面における有機電界発光素子によれば、陽極を銀とパラジウムと銅とを含む合金により構成するようにしたので、陽極の化学的安定性、加

工精度および密着性を向上させることができる。よって、より特性を向上させることができる。

また、本発明の他の一局面における有機電界発光素子によれば、陽極における銀の含有量を50質量%以上とするようにしたので、反射率を十分に高くしつつ、化学的安定性、加工精度および密着性を改善することができる。よって、より特性を向上させることができる。

更に、本発明の他の一局面における有機電界発光素子によれば、陽極と有機層との間に、陽極よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層を有するようにしたので、有機層への正孔注入効率を高めることができる。また、陽極を構成する銀あるいは銀を含む合金が空気中の酸素あるいは硫黄成分と反応することを防止することができると共に、陽極を形成した後の製造工程においても陽極に対するダメージを緩和することができる。

加えて、本発明の他の一局面における有機電界発光素子の製造方法によれば、正孔注入用薄膜層を不活性ガス雰囲気中で成膜するようにしたので、陽極を反応性の高い銀あるいは銀を含む合金により構成するようにしても、正孔注入用薄膜層の成膜時に陽極が酸化などにより変質することを防止することができる。よって、陽極について目的とする特性を得ることができ、本発明の有機電界発光素子を容易に得ることができる。

更にまた、本発明の他の一局面における有機電界発光素子の製造方法によれば、正孔注入用薄膜層をエリアマスクを用いて成膜するようにしたので、リソグラフィ技術などを用いた正孔注入用薄膜層のパターニングを行う必要がなくなる。よって、陽極を反応性の高い銀または銀を含む合金により構成するようにしても、正孔注入用薄膜層をパターニングする際のエッチングにより陽極が過剰にエッチングされたり、あるいは変質することを防止することができる。従って、陽極のパターニング精度を向上させることができると共に、陽極について目的とする特性を得ることができる。すなわち、本発明の有機電界発光素子を容易に得ることができる。

以上の説明に基づき、本発明の種々の態様や変形例を実施可能であることは明らかである。したがって、以下のクレームの均等の範囲において、上記の詳細な

説明における態様以外の態様で本発明を実施することが可能である。

## 請求の範囲

1. 陽極と陰極との間に発光層を含む1層以上の有機層を備え、前記発光層で発生した光を前記陰極の側から取り出す有機電界発光素子であって、

前記陽極は、銀（A g）または銀を含む合金により構成されたことを特徴とする有機電界発光素子。

2. 前記陽極は、銀と、パラジウム（P d）と、銅（C u）とを含む合金により構成されたことを特徴とする請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子。

3. 前記陽極は、銀を50質量%以上含むことを特徴とする請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子。

4. 前記陽極と前記有機電界発光層との間に、更に、前記陽極よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層を備えたことを特徴とする請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子。

5. 前記陰極は、前記発光層で発生した光に対して半透過性の半透過性電極を有し、

この半透過性電極と前記陽極とは、前記発光層で発生した光を共振させる共振器の共振部を構成している

ことを特徴とする請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子。

6. 前記陽極および前記半透過性電極で生じる反射光の位相シフトを $\Phi$ 、前記陽極と前記半透過性電極との間の光学的距離を $L$ 、前記陰極の側から取り出す光のスペクトルのピーク波長を $\lambda$ とすると、

前記光学的距離 $L$ は、数式2を満たす正の最小値であることを特徴とする請求の範囲第5項記載の有機電界発光素子。

（数式2）

$$2L/\lambda + \Phi/2\pi = q \quad (q \text{ は整数})$$

7. 陽極と陰極との間に発光層を含む1層以上の有機層を備え、前記発光層で発生した光を前記陰極の側から取り出す有機電界発光素子の製造方法であって、

基板の上に、銀（A g）または銀を含む合金よりなる陽極を成膜する工程と、

この陽極の上に、陽極よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層を、



不活性ガス雰囲気中において成膜する工程と、

この正孔注入用薄膜層の上に、発光層を含む1層以上の有機層を形成する工程と、

この有機層の上に、陰極を形成する工程と

を含むことを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

8. 陽極と陰極との間に発光層を含む1層以上の有機層を備え、前記発光層で発生した光を前記陰極の側から取り出す有機電界発光素子の製造方法であって、

基板の上に、銀 (Ag) または銀を含む合金よりなる陽極を成膜する工程と、

この陽極の上に、陽極よりも仕事関数の高い材料よりなる正孔注入用薄膜層を、形成予定領域に対応して開口を有するエリアマスクを用いて成膜する工程と、

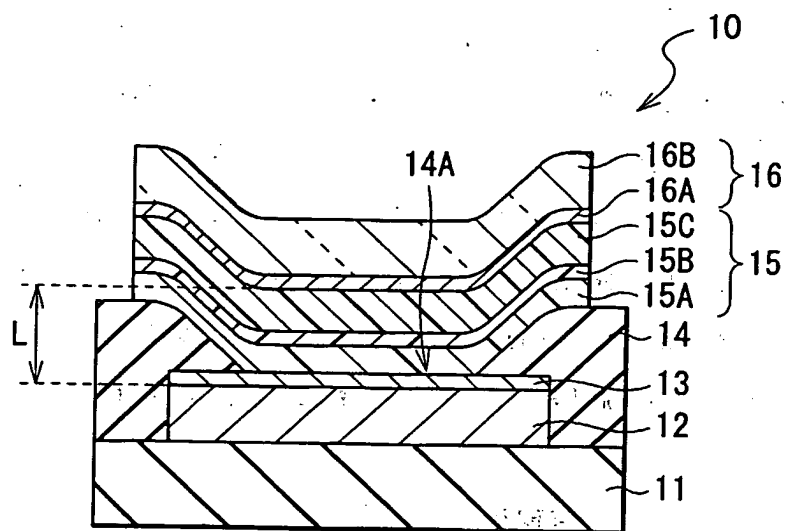
この正孔注入用薄膜層の上に、発光層を含む1層以上の有機層を形成する工程と、

この有機層の上に、陰極を形成する工程と

を含むことを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

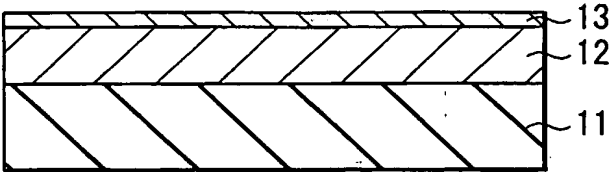
1/5

第1図

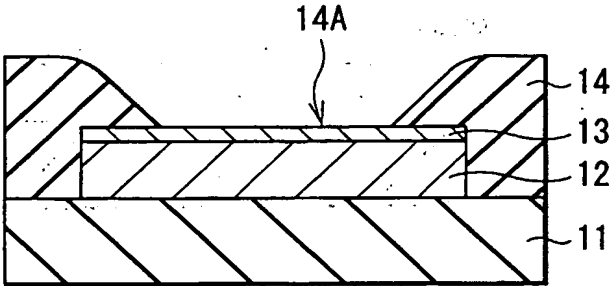


2/5

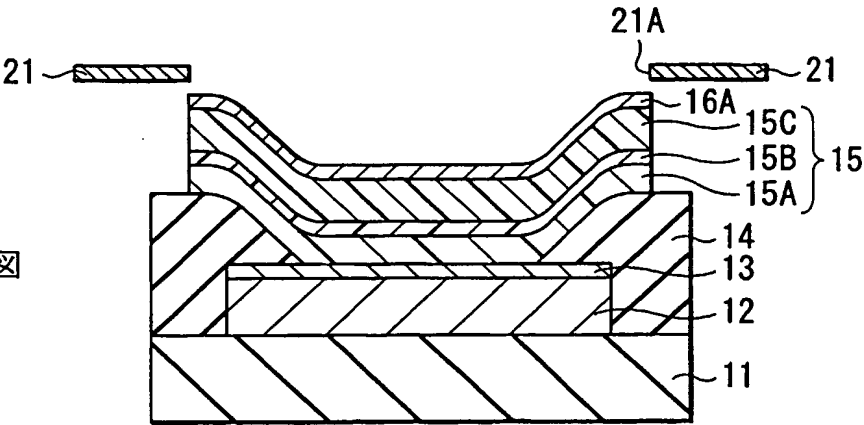
第2A図



第2B図

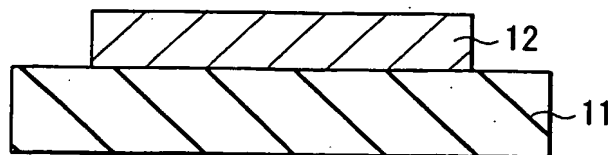


第2C図

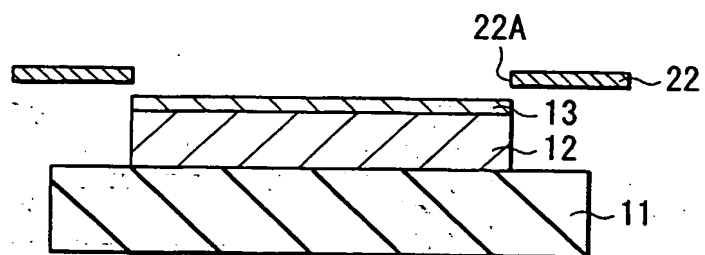


3/5

第3A図

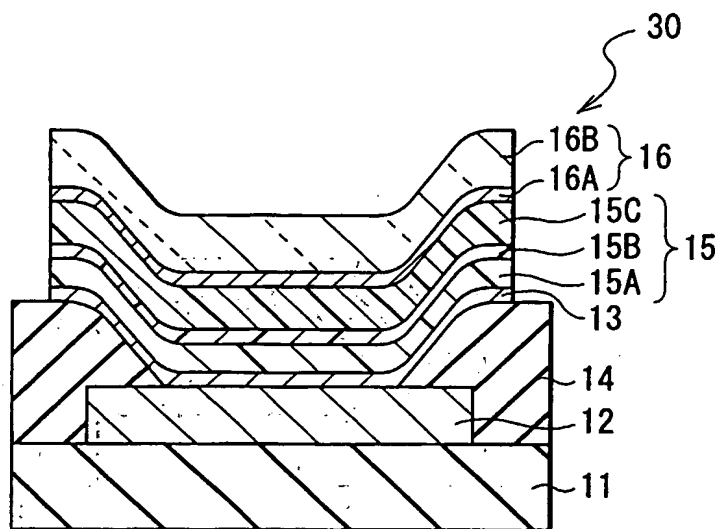


第3B図

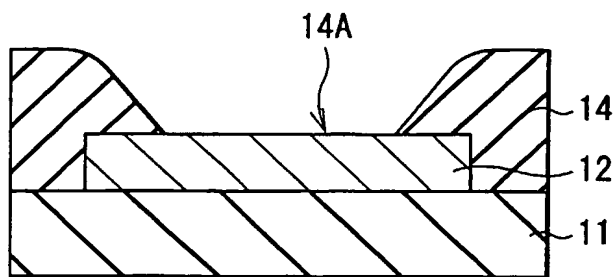


4/5

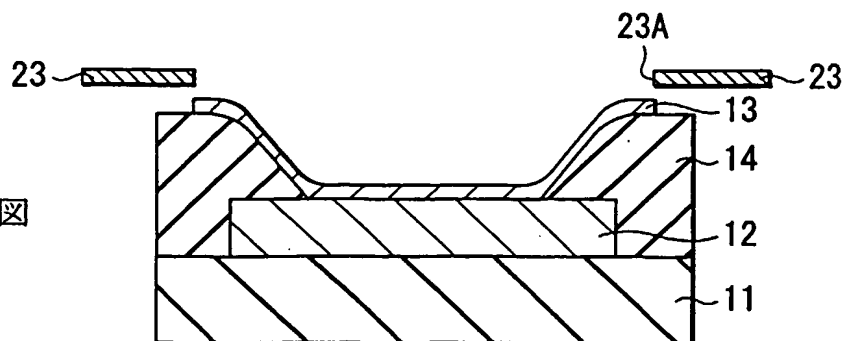
第4図



第5A図

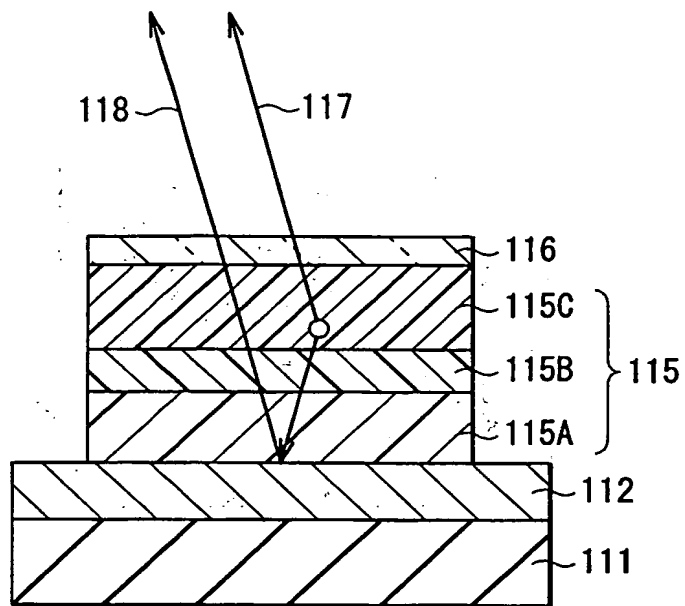


第5B図



5/5

第6図



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/06354

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> H05B33/24, 33/14, 33/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> H05B33/00-33/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 10-289784 A (Mitsubishi Electric Corp.), 27 October, 1998 (27.10.98), Full text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4 3, 5-8
Y	JP 5-41286 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 19 February, 1993 (19.02.93), Full text; all drawings (Family: none)	3
Y	JP 6-112529 A (Ricoh Co., Ltd.), 22 April, 1994 (22.04.94), Full text; all drawings (Family: none)	5, 6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
22 July, 2002 (22.07.02)Date of mailing of the international search report  
06 August, 2002 (06.08.02)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/06354

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2001-143864 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 25 May, 2001 (25.05.01), Full text; all drawings (Family: none)	7
Y	JP 2000-100564 A (Sony Corp.), 07 April, 2000 (07.04.00), Full text; all drawings (Family: none)	8



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H05B 33/24, 33/14, 33/10

B. 調査を行った分野  
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H05B 33/00-33/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2002年  
日本国登録実用新案公報 1994-2002年  
日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 10-289784 A (三菱化学株式会社) 1998. 10. 27, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4 3, 5-8
Y	JP 5-41286 A (富士電機株式会社) 1993. 02. 19, 全文, 全図 (ファミリーなし)	3
Y	JP 6-112529 A (株式会社リコー) 1994. 04. 22, 全文, 全図 (ファミリーなし)	5, 6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に関する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日  
22. 07. 02

国際調査報告の発送日  
06.08.02

国際調査機関の名称及びあて先  
日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
寺澤 忠司



3X 9623

電話番号 03-3581-1101 内線 3371

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2001-143864 A (富士写真フイルム株式会社) 2001. 05. 25, 全文, 全図 (ファミリーなし)	7
Y	JP 2000-100564 A (ソニー株式会社) 2000. 04. 07, 全文, 全図 (ファミリーなし)	8